

原油热演化进程中烃类成熟度参数有效性探讨

韦志伟^{1,2,3}, 邓晗宇^{1,2,3}, 李诗达^{1,2,3}, 王浩哲^{1,2,3},
邓倩^{1,2,3}, 张海祖⁴, 程斌^{1,2}, 廖泽文^{1,2*}

(1. 中国科学院 广州地球化学研究所, 有机地球化学国家重点实验室, 广东 广州 510640; 2. 中国科学院 深地科学卓越创新中心, 广东 广州 510640; 3. 中国科学院大学, 北京 100049; 4. 中国石油塔里木油田分公司石油勘探开发研究院, 新疆 库尔勒 841000)

摘要: 原油中烃类生标化合物参数可以用于判识原油的成熟度, 然而这些成熟度指标的有效性常受物源及热成熟阶段的影响。本研究主要对原油在热演化进程中成熟度参数的有效性进行探讨。在进入高成熟阶段($R_o > 1.3\%$)后, 常规原油成熟度参数 $Ts/(Ts+Tm)$ 、 $C_{29-20S}/(20S+20R)$ 和 $C_{29-ββ}/(ββ+αα)$ 等, 达到平衡不变或因化合物消耗殆难以准确测定, 无法正确评价原油热演化特征。常用的甲基菲指标(MPI)因其具有分段性计算特征, 实际应用时较难把握, 容易导致误判。油藏进入高、过成熟演化阶段, 指示芳构化程度的参数或一些热稳定性存在差异的芳烃异构化参数可以合理表征油藏热演化程度。实验结果表明, 高、过成熟油藏中甲苯(Tol)与甲基环己烷(MCH)存在消长变化关系, 2-甲基萘(2-MN)和 1-甲基萘(1-MN)是热稳定性不同的异构体, $Tol/(MCH+Tol)$ 值和 $2-MN/(1-MN+2-MN)$ 值与热演化成熟度参数 Easy R_o 之间存在良好的相关性, 可以较好地应用于高成熟油藏成熟度的判识。

关键词: 芳烃化合物; 成熟度参数; 高成熟度油藏; 热模拟实验

中图分类号: P618.13

文献标志码: A

文章编号: 0379-1726(2022)05-0549-07

DOI: 10.19700/j.0379-1726.2021.01.015

Applicability of hydrocarbon-associated thermal maturity parameters as indicators of the thermal evolution of crude oil

WEI Zhiwei^{1,2,3}, DENG Hanyu^{1,2,3}, LI Shida^{1,2,3}, WANG Haozhe^{1,2,3}, DENG Qian^{1,2,3},
ZHANG Haizu⁴, CHENG Bin^{1,2}, LIAO Zewen^{1,2*}

(1. State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Science, Guangzhou 510640, Guangdong, China; 2. CAS Center for Excellence in Deep Earth Science, Guangzhou 510640, Guangdong, China; 3. University of Chinese Academy of Science, Beijing 100049, China; 4. Research Institute of Petroleum Exploration and Development, PetroChina, Tarim Oilfield Company, Korla 841000, Xinjiang, China)

Abstract: Traditional biomarker maturity parameters are very important in determining the thermal stage of crude oil reservoirs. However, some biomarker maturity indicators are constrained by their provenance and various thermal mature stages. In this study, we discuss the validity of biomarker maturity parameters in the thermal evolution of crude oil. The results showed that some conventional maturity parameters such as $Ts/(Ts+Tm)$, $C_{29-20S}/(20S+20R)$, and $C_{29-ββ}/(ββ+αα)$ reached an equilibrium value without changing after the high maturity stage (such as $R_o > 1.3\%$), or broke down and thus cannot be used to properly evaluate the stage of thermal evolution of crude oil reservoirs. In addition, the commonly used methylphenanthrene index (MPI1) is difficult to properly apply in the oil reservoirs due to its piecewise evolution characteristics. As oil reservoirs entered the high mature

收稿日期: 2020-12-11; 改回日期: 2021-01-13

项目资助: 中国科学院先导 A 专项(XDA14010103)和中国科学院广州地球化学研究所有机地球化学国家重点实验室“十四五”自主课题(SKLOG2020-1)联合资助。

第一作者简介: 韦志伟(1993-), 男, 博士研究生, 油气地球化学专业。E-mail: weizhiwei17@mails.ucas.ac.cn

通信作者: 廖泽文(1969-), 男, 研究员, 主要从事油气地球化学方面的研究工作。E-mail: liaozw@gig.ac.cn

stage, aromatization of hydrocarbon fluids became increasingly important, such that certain parameters associated with different thermal stabilities can be used to represent the thermal evolution index. The results of this study show that toluene (Tol) and methylcyclohexane (MCH) levels in oil may have a correlational relationship, thus the ratio of Tol/(MCH+Tol) can be applied to evaluate the thermal stage of oil reservoirs. Furthermore, 2-methyl naphthalene (2-MN) and 1-methylnaphthalene (1-MN) have different thermal stabilities, and the ratios of 2-MN/(1-MN+2-MN) changed linearly with Easy R_o . These parameters can be applied to the evaluation of mature oil reservoirs, particularly those in the high mature stage.

Key words: aromatic hydrocarbons; maturity parameter; high mature oil reservoir; thermal simulation experiment

0 引言

油藏中的烃类成熟度指标有效性主要受控于油藏的两类演化过程: 一是热裂解反应(伴随芳构化作用); 二是手性碳原子的异构化作用(Peters et al., 2005)。常用的成熟度表征参数 $T_s/(T_s+T_m)$ 、 $C_{29-20S}/(20S+20R)$ 和 $C_{29-\beta\beta}/(\beta\beta+\alpha\alpha)$ 适用于原油低成熟阶段, 但到高、过成熟阶段可能已经不具备原生性地球化学意义(Lorenz and Petra, 2006; Yang et al., 2017); 在高、过成熟阶段, 原油中烃类长链组分基本被破坏, 以低碳数烃类为主, 芳烃的相对含量逐渐增加, 因此芳烃中的一些参数仍可适用, 如烷基萘指数和甲基菲比值等, 已有科研工作者对其进行了研究探讨(Radke and Welte, 1981; Radke et al., 1982)。

原油热演化进程中, 饱和环烷烃经芳构化作用生成更稳定的芳烃, 芳烃在进一步热演化过程中发生重排作用, 可通过这两个阶段烃类的热演化特征, 探讨适用于原油从低成熟到高成熟阶段的热成熟度参数。Cheng et al. (2018) 和 Liang et al. (2018) 分别通过对正丁基环己烷热解模拟实验和对塔里木盆地塔中深层轻质原油中甲苯(Tol)与甲基环己烷(MCH)相关关系的研究, 认为 Tol 与 MCH 存在成因联系, Tol 与 MCH 在低成熟到高成熟阶段都能检测到具有相对较高的含量, 因此, 可通过原油热解模拟实验探讨其相关关系。

本研究主要开展原油热演化进程中烃类成熟度参数的有效性探讨, 尤其是热演化进入凝析油或轻质油阶段($R_o > 1.3\%$), 这也是目前我国西部盆地深层原油赋存的一种重要形式, 如塔里木盆地塔中深层—超深层广泛分布轻质油藏。常用来表征成熟度的参数对于轻质油藏大多不适用, 在该演化阶段油藏中芳烃的芳构化突显。本研究通过对不同来源的原油开展热模拟实验, 探讨原油热演化芳构化过程中相关参数的变化特征, 以及一些芳烃异构化参数和热稳定性参数在高成熟油藏成熟度判识方面的应用。

1 样品与实验

选择塔里木盆地英买力地区 YM2 井(奥陶系, 5940.00~5953.00 m)、YM34 井(志留系, 5387.08 m)和塔中地区 TZ62 井(志留系, 4700.50~4758.00 m)的原油开展热模拟生成轻质油的实验。其中 YM2 井和 TZ62 井来自海相不同层系烃源岩, 而 YM34 井则来自陆相烃源岩, 通过对不同来源(海相和陆相)、不同层位(奥陶系和志留系)原油进行对比, 探讨不同含油气系统进入高成熟度阶段烃类芳构化特征和地球化学意义。

模拟实验采用高压黄金管限定体系, 共设置 6 个目标温度(330、350、370、390、410 和 430 °C), 每个温度对应的采样量分别为 90、80、70、60、50 和 40 mg, 2 h 将原油温度升至目标温度后恒温 72 h, 压力为 50 MPa。

将原油和每个目标温度的热解产物使用正戊烷(纯度 98%, 购于 SIGMA-ALDRICH)进行稀释, 用 GC-MS(安捷伦 8890)分析得到总离子流图(TIC)。使用氧化铝和硅胶柱分离方法将样品进行族组分分离, 正戊烷洗脱得到饱和烃组分, 氮吹浓缩后用于 GC-MS 分析, 得到甾萜烷等生标分布特征。

原油及热解产物 TIC: 抽取少量原油样品, 分别经抽提脱脂棉过滤, 使用正戊烷进行稀释, 转移至 4 mL 细胞瓶中静置 24 h, 抽取上清液转移至 2 mL 细胞瓶中, 用于 GC-MS 分析。使用二氯甲烷清洗金管表面, 并使用液氮冷凝 15 min 金管内气体, 然后剪切金管进入装有 0.5 mL 正戊烷细胞瓶中, 静置 24 h 取上清液进样分析。GC 升温程序为: 初始温度 35 °C, 保留 6 min, 然后以 2 °C/min 升至 295 °C, 采用脉冲分流, 分流比为 10:1, 脉冲压力 8 psi, 进样器温度 290 °C, 以纯 He 为载气, 流速 1.0 mL/min。MS 条件: 调谐类型采用 EI 电离方式, 扫描离子范围为 50~600, 单扫特征离子分别为 m/z 91、 m/z 98、 m/z 128、 m/z 142、 m/z 156、 m/z 178 和 m/z 192。

原油及热解产物甾萜烷检测: 经正戊烷稀释后的原油样品, 取上清液 0.2 mL; 稀释后的热解产物样品取 0.2 mL, 然后将原油样品与热解产物样品进行族组分分离。使用内径 0.8 cm 的分离柱, 依次装填 1 cm 氧化铝和 2 cm 硅胶, 先使用正戊烷分离出饱和和烃, 4 倍柱体积洗脱, 使饱和和烃充分提取出来, 得到的饱和和烃组分通过 N₂ 吹浓缩, 用于 GC-MS 检测。GC 方法: 起始温度 70 °C, 保留 1 min, 再以 10 °C/min 使温度升至 120 °C, 接着以 3 °C/min 升至 310 °C, 保留 25 min, 采用脉冲分流方式, 分流比为 10:1, 脉冲压力 10 psi, 进样器温度 290 °C, 以纯 He 为载气, 流速 1.5 mL/min。MS 条件: 调谐类型采用 EI 电离方式, 扫描离子范围 50~600, 单扫特征离子为 m/z 191 和 m/z 217。

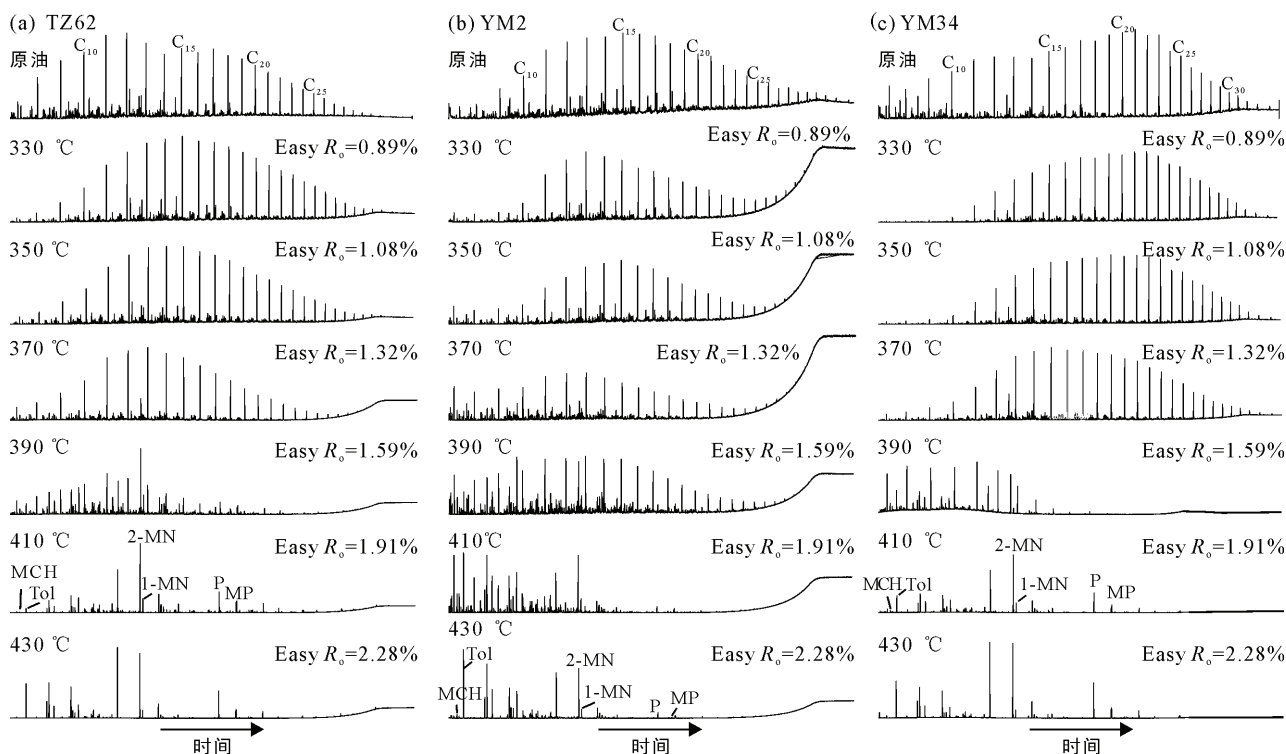
2 结果与讨论

2.1 原油及其热解产物中正戊烷可溶组分演化特征

塔里木盆地 3 个原油样品及不同温度热解产物烃类特征如图 1 所示。从 330 °C 至 430 °C, Easy R_o 值从 0.89% 升到 2.28%, 当 Easy R_o 值达到 2.28% 时,

还是以轻质油形式存在。在原油初始状态, 即原油未发生热解作用时, 正构烷烃碳数分布范围较广, 从 C₇~C₃₅ 均有分布。低温热解阶段(Easy R_o=0.89%), 奇偶优势和双峰群分布特征消失, 低碳数正构烷烃相对含量降低, 以中高碳数正构烷烃为主。随着热解温度的升高, 峰群往前移, 逐渐变为以中低碳数为主; 随着热演化程度进一步加强(Easy R_o>1.5%), 中高碳数正构烷烃消耗严重, 以低碳数正构烷烃和芳烃为主。当 Easy R_o 达到 1.91% 和 2.28% 时, 热解产物中以芳烃化合物为主。

从中高碳数正构烷烃热解生成低碳数正构烷烃开始, 油藏进入轻质油热演化阶段(Easy R_o>1.5%), 此时原油中烃类长链组分基本被破坏, 留下以小分子为主的烃类, 图 1 中 YM34 井和 TZ62 井原油在 Easy R_o=1.59% 时, 烃类中长链组分基本被破坏, 而 YM34 井原油在 Easy R_o=1.91% 时烃类中长链组分也消耗殆尽。在轻质油阶段, 油藏中芳构化作用越发明显, 其中一环、二环芳烃化合物为主要组成部分。这说明轻质油藏中芳构化是重要的演化过程(Rakotoalimanana et al., 2016, 2017; Cheng et al., 2018), 此时芳烃化合物成为重要的研究对象。



C₁₀、C₁₅、C₂₀、C₂₅ 分别为对应碳数的正构烷烃。MCH. 甲基环己烷; Tol. 甲苯; 2-MN. 2-甲基萘; 1-MN. 1-甲基萘; P. 菲; MP. 甲基菲。

图 1 3 个原油样品及热解产物中正戊烷可溶组分的总离子流图

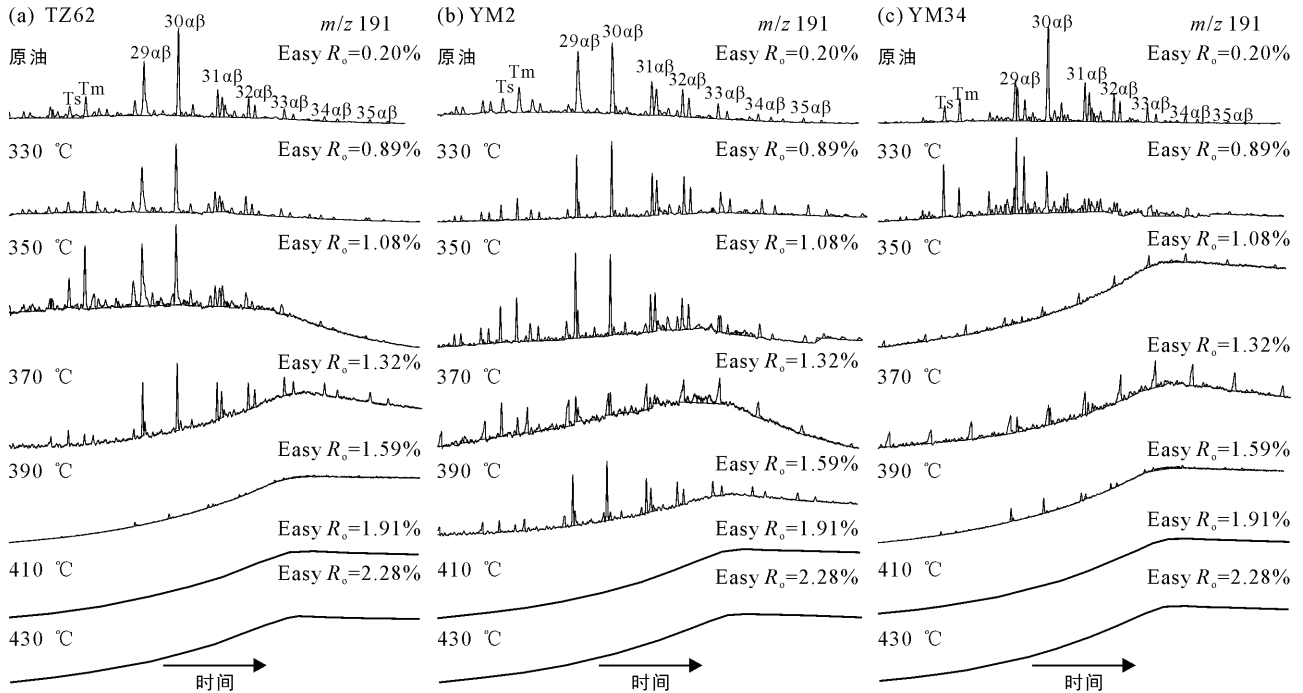
Fig.1 Total ion flow of n-pentane soluble components in three types of crude oil and their pyrolytic products

由此可见,在中、低成熟阶段,一些常用的成熟度参数可以适用,在高成熟阶段,这些成熟度参数可能逐渐失效,而到了过成熟阶段,生标化合物已严重热解损耗,相关参数已不再适用。

2.2 原油热解进程中常用成熟度参数的演化特征

一些常用萜类指示成熟度的参数,在进入轻质

油阶段逐渐失效。图2可知,萜类在Easy R_o 值达到1.59%时基本裂解消耗完,样品萜类浓度低于仪器检测限。表1所示,3个原油样品的Ts/(Ts+Tm)值达到0.6之后将会下降,在更高成熟度阶段甚至检测不到Ts和Tm,说明该参数在高、过成熟度阶段已经失效。



Ts. 18α(H)-22,29,30-三降藿烷; Tm. 17α(H)-22,29,30-三降藿烷; 29αβ. 17α(H)-21β(H)-21 乙基藿烷; 30αβ. 17α(H)-21β(H)-21 异丙基藿烷; 31αβ-35αβ: C₃₁-C₃₅ 升藿烷。

图2 3个原油样品及热解模拟实验产物中萜烷分布特征

Fig.2 Distribution characteristics of terpanes in three types of crude oil and their pyrolytic products

表1 3个原油样品及热解产物中各成熟度参数指标

Table 1 The maturity parameters of the three crude oil samples and their pyrolytic products

样品	Easy R_o (%)	Ts/(Ts+Tm) 萜烷	C ₃₁ -22S/(22S+22R) 藿烷	C ₃₂ -22S/(22S+22R) 藿烷	C ₂₉ -20S/(20S+20R) 甾烷	C ₂₉ -ββ/(ββ+αα) 甾烷	R _c , MPI (%)	R _o , MPR (%)
TZ62-原油	/	0.37	0.58	0.59	0.44	0.48	0.88	0.72
TZ62-330 °C	0.89	0.37	0.50	0.65	0.54	0.53	0.88	0.68
TZ62-350 °C	1.08	0.32	0.48	0.74	0.53	0.54	0.98	0.74
TZ62-370 °C	1.32	0.49	0.54	0.59	0.52	0.56	1.15	0.86
TZ62-390 °C	1.59	0.58	/	0.57	0.50	0.57	1.63	1.17
TZ62-410 °C	1.91	/	/	/	/	/	1.70	1.60
TZ62-430 °C	2.28	/	/	/	/	/	1.95	3.17
YM-原油	/	0.35	0.53	0.59	0.29	0.44	0.80	0.66
YM-330 °C	0.89	0.41	0.49	0.59	0.51	0.56	0.76	0.62
YM-350 °C	1.08	0.46	0.43	0.59	0.57	0.59	0.85	0.65
YM-370 °C	1.32	0.67	0.60	0.75	0.57	0.59	0.98	0.71
YM-390 °C	1.59	0.59	0.54	0.65	0.46	0.58	1.15	0.82
YM-410 °C	1.91	/	/	/	/	/	1.63	1.93
YM-430 °C	2.28	/	/	/	/	/	1.75	2.71

续表 1:

样品	Easy R_o (%)	Ts/(Ts+Tm) 萘烷	C_{31} -22S/(22S+22R) 藿烷	C_{32} -22S/(22S+22R) 藿烷	C_{29} -20S/(20S+20R) 甾烷	C_{29} - $\beta\beta$ /($\beta\beta+\alpha\alpha$) 甾烷	$R_{c, MPI}$ (%)	$R_{o, MPR}$ (%)
YM34-原油	/	0.47	0.56	0.60	0.30	0.28	0.83	0.73
YM34-330 °C	0.89	0.64	0.47	0.60	0.49	0.46	0.87	0.74
YM34-350 °C	1.08	0.51	0.36	0.86	0.50	0.50	0.94	0.76
YM34-370 °C	1.32	/	0.55	/	0.49	0.52	0.99	0.81
YM34-390 °C	1.59	0.64	0.60	0.59	0.53	0.54	1.86	1.1.
YM34-410 °C	1.91	/	/	/	/	/	1.89	2.01
YM34-430 °C	2.28	/	/	/	/	/	1.98	3.03

注: “/”表示没有该参数; $MPI = \frac{1.5(2\text{-甲基菲} + 3\text{-甲基菲})}{菲 + 1\text{-甲基菲} + 9\text{-甲基菲}}$, $R_{c, MPI} = 0.60MPI + 0.40(0.65 \leq R_o \leq 1.35)$, $R_{c, MPI} = -0.60MPI + 2.30(1.35 \leq R_o \leq 2.00)$;

$$MPR = \frac{2\text{-甲基菲} + 3\text{-甲基菲}}{1\text{-甲基菲} + 9\text{-甲基菲}}, R_{o, MPR} = 0.41 + 0.23 \times MPR。$$

C_{31} -22S/(22S+22R)藿烷及 C_{32} -22S/(22S+22R)藿烷也是常用的成熟度参数, C_{32} -22S/(22S+22R)藿烷随成熟度增加到生油门限, 比值逐渐增大, 达到 0.75 之后开始下降, 藿烷继续热解直至消耗殆尽, 该参数则完全失效。

C_{27} ~ C_{29} 规则甾烷在 Easy R_o 值达到 1.08% 时含量大幅降低, 甚至低于仪器检测限, YM34 井的热解产物在 Easy R_o 值达到 1.59% 时仍能检测到 C_{27} ~ C_{29} 规则甾烷(图 3)。由于原油中高分子量的烃类在高温高压下持续裂解, 形成分子量相对较低的甾烷类化合物, 因此甾烷类化合物含量会在较高成熟度阶段出现短暂增高(解启来等, 1999; 易传俊等, 2019),

然而由于原油本身的甾烷类生物标志化合物在高成熟阶段早已热解失效(孙浩等, 2015), 因此, 后期热解生成的甾烷类参数已不具备地球化学意义。

甾烷成熟度参数中, 常用指标有 C_{29} -20S/(20S+20R)、 C_{29} - $\beta\beta$ /($\beta\beta+\alpha\alpha$)和芳香族甾烷类化合物。 C_{29} -20S/(20S+20R)和 C_{29} - $\beta\beta$ /($\beta\beta+\alpha\alpha$)随着热成熟度的增高, 其比值先增大后保持平稳, 最后降低。前期升高主要是由于 S 构型比 R 构型、 $\beta\beta$ 构型比 $\alpha\alpha$ 构型稳定性更高, 在高温热解阶段, 热稳定性达到平衡, 比值基本变化不大, 后期短暂降低可能是因为高成熟阶段长链烃类的裂解作用生成了甾烷类化合物(陈世加等, 1997; 孙涛和段毅, 2011; 陈中红等, 2013)。

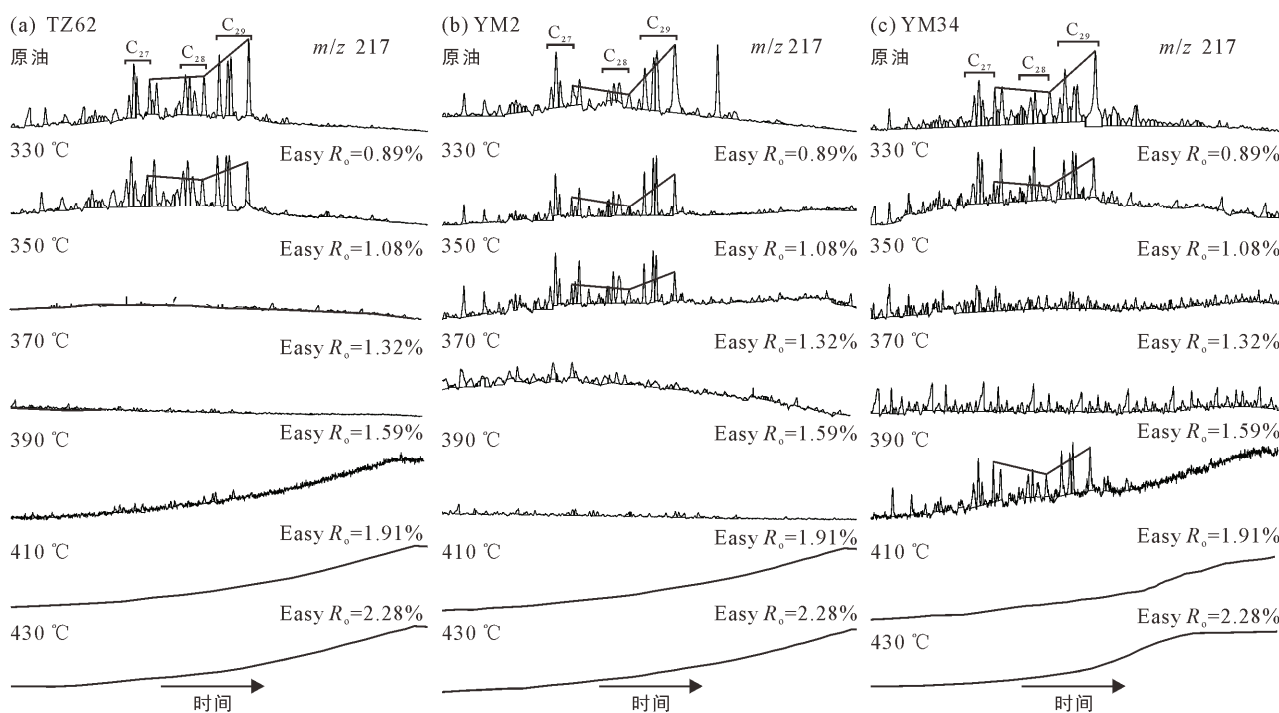


图 3 3 个原油样品及热模拟实验产物中甾烷分布特征

Fig.3 Distribution characteristics of steranes in three types of crude oil and their pyrolytic products

甲基菲指标 $\left(\text{MPI} = \frac{1.5(2\text{-甲基菲} + 3\text{-甲基菲})}{\text{菲} + 1\text{-甲基菲} + 9\text{-甲基菲}} \right)$ 和甲基菲比值 $\left(\text{MPR} = \frac{2\text{-甲基菲} + 3\text{-甲基菲}}{1\text{-甲基菲} + 9\text{-甲基菲}} \right)$ 也是常用的

芳烃成熟度参数, 由于 1-甲基菲(1-MP)和 9-甲基菲(9-MP)稳定性较差, 随着热演化程度的增加, 1-MP 和 9-MP 发生重排, 生成更稳定的 2-甲基菲(2-MP)和 3-甲基菲(3-MP)。由表 1 可知, 通过 MPI 计算出的 R_o 是分段式结果, 呈跳跃性变化, 且在实际地质样品中, 轻质油阶段三环芳烃化合物含量已较低, 相关参数的获取较困难, 而一环、二环的芳烃化合物值得重视。

常用的生标参数在低成熟-成熟阶段能合理使用, 但是到了高、过成熟阶段, 不再适用于表征热成熟度。在高、过成熟演化阶段, 轻质油中芳烃的含量逐渐增多, 这是由于热成熟演化过程中饱和和烃发生芳构化形成的, 此时油藏中体现芳构化程度或一些热稳定性存在差异的芳烃化合物的参数有望应用于表征成熟度。

2.3 原油热解进程中轻质油演化阶段烃类成熟度参数探讨

MCH 在热演化过程中通过芳构化生成 Tol (Rakotoalimanana et al., 2016, 2017; Cheng et al., 2018), 虽然其他热裂解或环化方式也会生成 MCH 或者 Tol, 但通过 MCH 生成 Tol 是 Tol 富集的重要方式。因此, 将 MCH 与 Tol 的比值用于探讨原油热成熟演化特征是较为适用的, 特别是在高、过成熟演化阶段, 仍能检测出大量的 MCH 和 Tol, 基于该芳烃产物及其前驱物, 推断 Tol/(MCH+Tol)比值参数与热演化程度之间具有相关性。

3 个原油样品各演化阶段的 Tol/(MCH+Tol)值和 Easy R_o 值呈现出良好的线性关系(图 4), TZ62 和 YM2 井原油各热演化阶段 Tol/(MCH+Tol)值和 Easy R_o 值的相关系数分别达到 0.9726 和 0.9821, YM34 井的原油也达到 0.9022。因此可以看出, Tol/(MCH+Tol)值能够很好地评价原油的热成熟度, 从生油窗阶段到高、过成熟阶段都适用。

Tol/(MCH+Tol)值是基于 MCH 与 Tol 的消长关系所得。轻质油芳烃组分中还含有大量的萘系列化合物, 原油中甲基萘是萘系列化合物中丰度最高的, 也有科研工作者对烷基萘参数进行探讨(Price, 1993; 李美俊和王铁冠, 2005; 周世新等, 2008)。根据烷基萘的热稳定性, 即 β 位置上的烷基萘比 α 位上的烷基萘更稳定, 因此, 在热成熟演化进程中, 1-甲基萘(1-MN)会重排形成更稳定的 2-甲基萘(2-MN), 根据热稳定性, 推断 2-MN/(1-MN+2-MN)值和 Easy R_o 值

存在较好的线性关系。

图 5 可见, TZ62 和 YM2 井原油各演化阶段的 2-MN/(1-MN+2-MN)值和 Easy R_o 值呈现出良好的线性关系, 相关系数分别为 0.975 和 0.9742, 而 YM34 井原油达到 0.9379。可见, 2-MN/(1-MN+2-MN)值能在油藏的各个演化阶段较好地评价热成熟度。

原油热解模拟实验结果表明, Tol/(MCH+Tol)值和 2-MN/(1-MN+2-MN)值与热演化程度具有良好的线性相关性, 与其他常用的生标化合物组成的参数相比, 呈现出在高、过成熟阶段仍适用的特征。虽然实验结果来自于封闭的黄金管限定体系, 与实际油藏环境存在一定的差异, 但地质条件下当油藏演化至高、过成熟阶段时, 往往存在于深埋的高温高压环境中, 其热演化地球化学特征也很大程度受到封闭性的约束。Liang et al. (2018)和 Zhang et al. (2020)将以上两个参数应用于塔里木盆地塔中深层轻质油

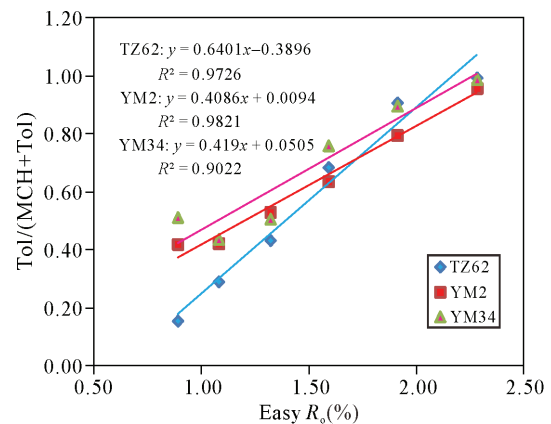


图 4 3 个原油样品各温度点的 Easy R_o 与 Tol/(MCH+Tol)的关系

Fig.4 Relationship between Easy R_o and Tol/(MCH+Tol) at each temperature point of three samples

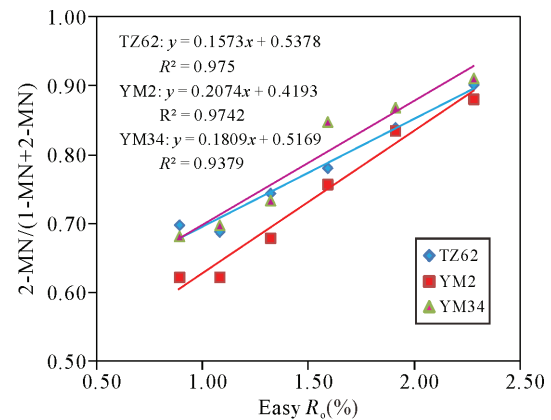


图 5 3 个原油样品各温度点的 Easy R_o 与 2-MN/(1-MN+2-MN)值的关系

Fig.5 Relationship between Easy R_o and 2-MN/(1-MN+2-MN) at each temperature point of three samples

藏探讨其成藏演化特征,也验证了这两个参数可以较好地指示油藏的热演化程度,显示出良好的应用前景。

3 结 论

(1) 常用的饱和烃热成熟度参数如 $T_s/(T_s+T_m)$ 、萘烷 $C_{32}22S/(22S+22R)$ 、 $C_{31}22S/(22S+22R)$ 以及甾烷 $C_{29}20S/(20S+20R)$ 、 $C_{29}\beta/(\alpha\alpha+\beta\beta)$ 等,在低成熟-成熟阶段能够较好适用于探讨原油热演化特征,而在高、过成熟阶段则无法有效表征原油热成熟演化特征。常用的芳烃化合物甲基菲成熟度指标,由于采用分段式处理方法讨论的 R_o 值呈跳跃式改变,实际运用中不易把握其范围,并且在高过成熟度阶段,油藏中三环的芳烃化合物含量相对较低、不易准确测定,很难应用于油藏热演化程度的判识。

(2) 甲苯和甲基环己烷比值关系 $Tol/(MCH+Tol)$ 值以及 1-甲基萘和 2-甲基萘比值参数 $2-MN/(1-MN+2-MN)$ 值能较好表征原油的热演化特征,与 Easy R_o 参数之间具有良好的线性相关性。特别是在高过成熟度演化阶段,轻质油藏中这些化合物含量丰富,当其他常用的烃类成熟度参数不再适用时,这 2 个与芳烃化合物相关的参数比值仍可以表征油藏热演化程度,显示出良好的应用前景。

致谢:感谢中国科学院广州地球化学研究所有机地球化学国家重点实验室李勇和王强博士在模拟实验方面的帮助,衷心感谢两位审稿专家提出的修改意见,对我们提高稿件质量提供了很大帮助。

参考文献(References):

- 陈世加,王廷栋,黄清德,林峰. 1997. C_{29} 甾烷成熟度指标“倒转”及其地质意义. 天然气地球科学, 8(1): 28-30.
- 陈中红,张守春,查明. 2013. 不同压力体系下原油裂解的地球化学演化特征. 中国科学: 地球科学. 43(11): 1807-1818.
- 李美俊,王铁冠. 2005. 原油中烷基萘的形成机理及其成熟度参数应用. 石油实验地质, 27(6): 606-611.
- 孙浩,李素梅,庞秋菊. 2015. 塔里木盆地深层原油热演化特征——热模拟实验的证据. 应用基础与工程科学学报, 23(6): 1120-1133.
- 解启来,范善发,周中毅. 1999. 铁岭灰岩晶包有机质的甾萘烷在高温高压条件下演化特征. 地球化学, 28(6): 596-604.
- 孙涛,段毅. 2011. 煤系有机质生成烃类中甾烷系列化合物地球化学特征——以高温封闭体系下热模拟实验为例. 天然气地球科学, 22(6): 1082-1087.
- 易传俊,张敏,滕梨. 2019. 热力作用对塔里木盆地海相原油中甾烷类化合物组成和分布的影响. 现代地质,

33(4): 853-862.

- 周世新,贾星亮,宋振响,王保衷,邹红亮,史基安. 2008. 塔里木盆地深层碳酸盐岩中不同赋存形式芳烃化合物组成. 沉积学报, 26(2): 330-338.
- Cheng B, Liang Y G, Xu J B, Deng Q, Wei Z W, Oluwabamise L F, Liao Z W. 2018. Remarkable fractionation of the hydrogen isotope (δD) of hydrocarbon during the fast aromatization process: Insights from the pyrolysis experiments of n-butylcyclohexane. *ACS Earth and Space Chemistry*, 2(12): 1240-1248.
- Liang Y G, Xu J B, Li W W, Cheng B, Deng Q, Zhang H Z, Liao Z W. 2018. The geochemical characteristics of Tazhong crude oils from the Tarim Basin, northwestern China. *Energy Exploration & Exploitation*. 36(4): 764-786.
- Lorenz S, Petra E. 2006. Sterane biomarkers as indicators of palaeozoic algal evolution and extinction events. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*. 240(1-2): 225-236.
- Peters K E, Walters C C, Moldowan J M. 2005. The biomarker guide // Biomarkers and isotopes in the environment and human history. United Kingdom: Cambridge University Press: 18-43.
- Price L C. 1993. Thermal stability of hydrocarbons in nature: Limits, evidence, characteristics, and possible control. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 57(14): 3261-3280.
- Radke M, Welte D H, 1981. The methylphenanthrene index (MPI): A maturity parameter based on aromatic hydrocarbons // Bjoroy M. *Advances in Organic Geochemistry*. Chichester: Wiley: 504-512.
- Radke M, Welte D H, Willsch H, 1982. Geochemical study on a well in the Western Canada Basin: Relation of the aromatic distribution pattern to maturity of organic matter. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 46(1): 1-10.
- Rakotoalimanana D A, Bounaceur R, Béhar F, Burklé-Vitzthum V, Marquaire P M. 2016. Thermal cracking of n-Butylcyclohexane at high pressure (100 bar) — Part 2: Mechanistic modeling. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, 120: 174-185.
- Rakotoalimanana D A, Bounaceur R, Sirjean B, Béhar F, Burklé-Vitzthum V, Marquaire P M. 2017. Thermal cracking of 1-n-Butyldecalin at high pressure (100 bar). *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, 123: 204-215.
- Yang Y F, Zhang M, Chen J L, Chen X H. 2017. Thermal effect on the distribution of regular sterane and geological significance. *Open Journal of Yangtze Oil and Gas*, 2(4): 249-259.
- Zhang H Z, Xu J B, Zhang K, Wei Z W, Zhao Q, Oluwabamise L F, Cheng B. 2020. Geochemical characteristics of carbon and hydrogen isotopes of light crude oils from the deep reservoirs in the Tazhong area of Tarim Basin, NW China. *Petroleum Science and Technology*, 38(5): 509-515.